

DIALOG(R)File 345:Inpadoc/Fam.& Legal Stat
(c) 2003 EPO. All rts. reserv.
14454416

Basic Patent (No,Kind,Date): JP 10168559 A2 980623 <No. of Patents: 001>
ORGANIC THIN FILM FORMING DEVICE AND METHOD FOR REUTILIZING
ORGANIC MATERIAL (English)

Patent Assignee: ULVAC CORP

Author (Inventor): NAGASHIMA NAOKI; TAKAHASHI NATSUKI; NEGISHI TOSHIO

IPC: *C23C-014/12; C09K-011/01; C09K-011/06; H01L-021/203; H01L-051/00

CA Abstract No: *129(05)060431H; 129(05)060431H

Derwent WPI Acc No: *C 98-409059; C 98-409059

Language of Document: Japanese

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applic No	Kind	Date
JP 10168559	A2	980623	JP 96342653	A	961206 (BASIC)

Priority Data (No,Kind,Date):
JP 96342653 A 961206

BEST AVAILABLE COPY

DIALOG(R)File 347:JAPIO

(c) 2003 JPO & JAPIO. All rts. reserv.

05885459 **Image available**

ORGANIC THIN FILM FORMING DEVICE AND METHOD FOR
REUTILIZING ORGANIC MATERIAL

PUB. NO.: 10-168559 [JP 10168559 A]

PUBLISHED: June 23, 1998 (19980623)

INVENTOR(s): NAGASHIMA NAOKI
TAKAHASHI NATSUKI
NEGISHI TOSHIO

APPLICANT(s): ULVAC JAPAN LTD [352286] (A Japanese Company or Corporation),
JP (Japan)

APPL. NO.: 08-342653 [JP 96342653]

FILED: December 06, 1996 (19961206)

INTL CLASS: [6] C23C-014/12; C09K-011/01; C09K-011/06; H01L-021/203;
H01L-051/00

JAPIO CLASS: 12.6 (METALS -- Surface Treatment); 13.9 (INORGANIC CHEMISTRY
-- Other); 42.2 (ELECTRONICS -- Solid State Components); 43.4
(ELECTRIC POWER -- Applications)

JAPIO KEYWORD: R005 (PIEZOELECTRIC FERROELECTRIC SUBSTANCES); R020
(VACUUM TECHNIQUES)

ABSTRACT

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic thin film forming device capable of easily recovering an organic material adhered to a shutter for screening vapor from an evaporating source for an organic material and to provide a method for reutilizing an organic material.

SOLUTION: This organic thin film forming device has an evaporating source 3 for an organic material evaporating an organic material 14 in a vacuum tank 2 and forming organic thin film on a substrate and a shutter 4 screening and shielding the vapor of the organic material 14 evaporated from the evaporating source 3 for an organic material till a prescribed evaporating rate can be obtained. The organic material 14 deposited on the shutter 4 is heated to reevaporate by a heater 5, and the vapor is cooled by a shroud 7 in which a cooling medium 71 circulates and is captured and housed in a housing part 70. The organic material for forming an organic EL element high in purity can be reutilized.

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-168559

(43) 公開日 平成10年(1998) 6月23日

(51) Int. Cl.⁶
C23C 14/12
C09K 11/01
11/06
H01L 21/203
51/00

識別記号

F I
C23C 14/12
C09K 11/01
11/06
H01L 21/203
29/28

Z
M

審査請求 未請求 請求項の数 8 F D (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平8-342653

(22) 出願日 平成 8 年(1996)12月 6 日

(71) 出願人 000231464

日本真空技術株式会社
神奈川県茅ヶ崎市萩園2500番地

(72) 発明者 長嶋 直樹

神奈川県茅ヶ崎市萩園2500番地 日本真空
技術株式会社内

(72) 発明者 高橋 夏木

神奈川県茅ヶ崎市萩園2500番地 日本真空
技術株式会社内

(72) 発明者 根岸 敏夫

神奈川県茅ヶ崎市萩園2500番地 日本真空
技術株式会社内

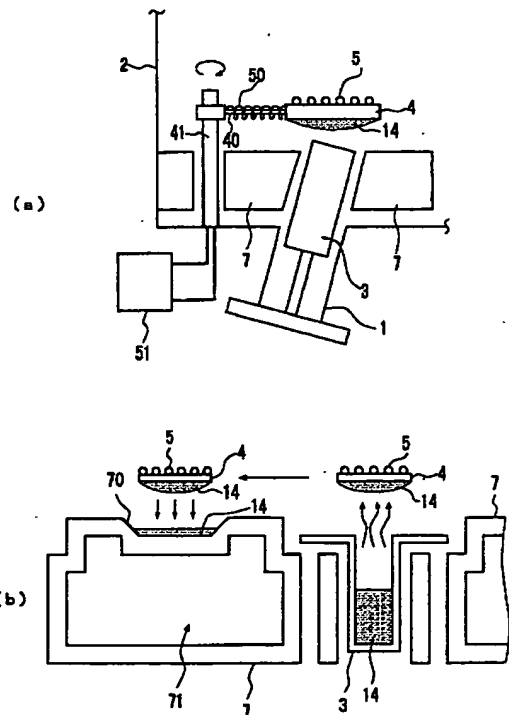
(74) 代理人 弁理士 石島 茂男 (外 1 名)

(54) 【発明の名称】 有機薄膜形成装置及び有機材料の再利用方法

(57) 【要約】

【課題】 有機材料用蒸発源からの蒸気を遮蔽するためのシャッターに付着した有機材料を容易に回収することができる有機薄膜形成装置及び有機材料再利用方法を提供する。

【解決手段】 本発明の有機薄膜形成装置は、真空槽 2 中で有機材料 14 を蒸発させて基板上に有機薄膜を形成する有機材料用蒸発源 3 と、有機材料用蒸発源 3 から蒸発した有機材料 14 の蒸気を所定の蒸発速度が得られるまで遮蔽し封じ込めておくためのシャッター 4 とを有する。シャッター 4 に付着した有機材料 14 をヒーター 5 によって加熱して再蒸発させ、その蒸気を冷却媒体 7 1 が循環されるシュラウド 7 で冷却し、收容部 7 0 に捕獲收容する。本発明によれば、純度の高い有機 E L 素子形成用の有機材料を再利用することができる。



BEST AVAILABLE COPY

【特許請求の範囲】

【請求項 1】真空槽中で所定の有機材料を蒸発させて基体上に有機薄膜を形成するための蒸発源と、

該蒸発源から蒸発した上記有機材料の蒸気を所定の蒸発速度が得られるまで遮蔽し封じ込めておくためのシャッターと、

該シャッターに付着した上記有機材料を加熱して再蒸発させるための加熱手段と、

該シャッターから蒸発した上記有機材料を捕獲して収容する収容手段とを備えたことを特徴とする有機薄膜形成装置。 10

【請求項 2】収容手段が真空槽中の蒸気を冷却するための冷却手段を有することを特徴とする請求項 1 記載の有機薄膜形成装置。

【請求項 3】液体窒素によって真空槽中の蒸気を冷却する冷却手段を有することを特徴とする請求項 2 記載の有機薄膜形成装置。

【請求項 4】所定の有機材料が有機エレクトロルミネッセンス素子を形成するための有機化合物モノマーであることを特徴とする請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項記載の有機薄膜形成装置。 20

【請求項 5】真空蒸着用蒸発源から蒸発した所定の有機材料の蒸気をシャッターによって所定の蒸発速度が得られるまで遮蔽し封じ込めておく有機薄膜形成装置において、該シャッターに付着した上記有機材料を加熱して再蒸発させ、この有機材料を捕獲収容して再び蒸発材料として用いることを特徴とする有機蒸発材料の再利用方法。

【請求項 6】シャッターから再蒸発した有機材料の蒸気を冷却して捕獲収容することを特徴とする請求項 5 記載の有機蒸発材料の再利用方法。 30

【請求項 7】液体窒素によって有機材料の蒸気を冷却することを特徴とする請求項 6 記載の有機蒸発材料の再利用方法。

【請求項 8】所定の有機材料が有機エレクトロルミネッセンス素子を形成するための有機化合物モノマーであることを特徴とする請求項 5 乃至 7 のいずれか 1 項記載の有機蒸発材料の再利用方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、例えば、有機 EL（電界発光）素子等を製造する際に、基体上に有機化合物の蒸着膜を形成するための有機薄膜形成装置及び有機材料の再利用方法に関する。

【0002】

【従来の技術】従来、半導体を中心としたエレクトロニクスは無機物を対象として発展してきたが、近年、有機化合物を用いた機能性薄膜が着目されている。有機化合物を利用する理由として、

①無機物より多様な反応系・特性が利用できる。

②無機物より低エネルギーで表面処理ができる。
ということがあげられる。

【0003】このような機能性薄膜として、有機 EL 素子・圧電センサ・焦電センサ・電気絶縁膜等がある。このような機能性薄膜は、主として蒸着によって形成されるが、これらのうち、特に有機 EL 素子は、ディスプレイパネルとして利用が可能であることから、蒸着成膜の面積化が求められている。

【0004】図 5 は、従来の有機薄膜形成装置の概略構成を示すものである。図 5 に示すように、この有機薄膜形成装置 100 は、図示しない真空排気系に連結される真空槽 101 を有し、この真空槽の下部に設けられる導入部 101A、101B に、複数の有機材料用蒸発源 102A、102B が仕切板 103 を挟んで両側に配設される。

【0005】有機材料用蒸発源 102A、102B の上方近傍には、有機材料の蒸気を閉じこめておくためのシャッター 104A、104B がそれぞれ設けられ、これらのシャッター 104A、104B の上方近傍には、成膜速度を測定するための膜厚モニター 105A、105B が設けられる。

【0006】一方、真空槽 101 の上部には、蒸着膜を成膜すべき基板 106 が配置される。そして、基板 54 の上方に、加熱部 107 を有する加熱手段 108 が、基板 106 に密着するように設けられる。さらに、基板 106 の下方には、有機材料の蒸気を遮るためのメインシャッター 109 が設けられる。

【0007】この有機薄膜形成装置 100 を用いて基板 106 上に蒸着を行う場合には、真空槽 101 内の真空排気を行い、シャッター 104A、104B 及びメインシャッター 109 を閉じた状態で有機材料用蒸発源 102A、102B 内の有機材料を所定の温度に加熱する。

【0008】そして、各有機材料が所定の温度に達して所要の蒸発量が得られた後に、シャッター 104A、104B 及びメインシャッター 109 を開き、所定の析出速度で基板 106 上に有機材料を蒸着し、堆積させて所定の厚みの有機薄膜を形成した後にシャッター 104A、104B 及びメインシャッター 109 を閉じる。

【0009】

40 【発明が解決しようとする課題】しかしながら、従来の有機薄膜形成装置 100 の場合、有機材料用蒸発源 101A、101B 内の有機材料が所定の温度に達して所要の蒸発量が得られるまでシャッター 104A、104B を閉じておく必要があるため、シャッター 104A、104B の裏面、すなわち、有機材料用蒸発源 101A、101B と対向する面に有機材料が付着するという問題がある。

50 【0010】このシャッター 104A、104B の裏面に付着した有機材料をそのまま放置しておく、シャッター 104A、104B の開閉の際の振動によってこの

有機材料が粉体として舞い上がり、その結果、均一な厚みの蒸着膜が得られない場合がある。このため、従来の装置においては、頻繁にシャッター 104A、104B の清掃を行わなければならなかった。

【0011】また、従来、シャッター 104A、104B の裏面に付着した有機材料は捨てられていたが、この種の有機材料は高価なものもあり、しかも、真空中で再蒸発された有機材料は精製されている場合が多いため、再利用したいという要望もあった。

【0012】本発明は、このような従来の技術の課題を解決するためになされたもので、有機材料用蒸発源からの蒸気を遮蔽するためのシャッターに付着した有機材料を容易に回収することができる有機薄膜形成装置及び有機材料の再利用方法を提供することを目的とする。

【0013】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため、請求項 1 記載の発明は、真空槽中で所定の有機材料を蒸発させて基体上に有機薄膜を形成するための蒸発源と、該蒸発源から蒸発した上記有機材料の蒸気を所定の蒸発速度が得られるまで遮蔽し封じ込めておくためのシャッターと、該シャッターに付着した上記有機材料を加熱して再蒸発させるための加熱手段と、該シャッターから蒸発した上記有機材料を捕獲して収容する収容手段とを備えたことを特徴とする有機薄膜形成装置である。

【0014】この場合、請求項 2 記載の発明のように、請求項 1 記載の発明において、収容手段が真空槽中の蒸気を冷却するための冷却手段を有することも効果的である。

【0015】また、請求項 3 記載の発明のように、請求項 2 記載の発明において、液体窒素によって真空槽中の蒸気を冷却する冷却手段を有することも効果的である。

【0016】さらに、請求項 4 記載の発明のように、請求項 1 乃至 3 のいずれかに記載の発明において、所定の有機材料が有機エレクトロルミネッセンス素子を形成するための有機化合物モノマーである場合に特に効果がある。

【0017】一方、請求項 5 記載の発明は、真空蒸着用蒸発源から蒸発した所定の有機材料の蒸気をシャッターによって所定の蒸発速度が得られるまで遮蔽し封じ込めておく有機薄膜形成装置において、該シャッターに付着した上記有機材料を加熱して再蒸発させ、この有機材料を捕獲収容して再び蒸発材料として用いることを特徴とする有機蒸発材料の再利用方法である。

【0018】この場合、請求項 6 記載の発明のように、請求項 5 記載の発明において、シャッターから再蒸発した有機材料の蒸気を冷却して捕獲収容することも効果的である。

【0019】また、請求項 7 記載の発明のように、請求項 6 記載の発明において、液体窒素によって有機材料の蒸気を冷却することも効果的である。

【0020】さらに、請求項 8 記載の発明のように、請求項 5 乃至 7 のいずれかに記載の発明において、所定の有機材料が有機エレクトロルミネッセンス素子を形成するための有機化合物モノマーである場合に特に効果がある。

【0021】かかる構成を有する請求項 1 記載の発明の場合、シャッターに付着した有機材料を加熱手段によって加熱し、蒸発した有機材料を収容手段によって捕獲して収容するようにしたことから、有機材料用蒸発源と対向するシャッターの面を容易に有機材料の付着しない状態とすることができ、その結果、成膜時におけるシャッターの開閉の際の振動によって有機材料が粉体として舞い上がることがなくなり、また、頻繁に清掃する必要もなくなる。

【0022】この場合、請求項 2 記載の発明のように、収容手段が真空槽中の蒸気を冷却するための冷却手段を有し、特に、請求項 3 記載の発明のように、液体窒素によって冷却するように構成すれば、有機材料の蒸気が捕獲されやすくなる。

【0023】また、請求項 5 記載の発明のように、シャッターに付着した有機材料を加熱して再蒸発させ、この有機材料を捕獲収容して再び蒸発材料として用いた場合、このシャッターに付着した有機材料は、真空中で蒸発されたものであるため、精製されている場合が多く、純度の高い有機蒸発材料を得ることができる。

【0024】この場合、請求項 6 記載の発明のように、シャッターから再蒸発した有機材料の蒸気を冷却して捕獲収容し、特に、請求項 7 記載の発明のように、液体窒素によって所定の有機材料の蒸気を冷却すれば、有機材料の蒸気が捕獲されやすくなり、有機材料の回収率が向上する。

【0025】また、請求項 4 又は 8 記載の発明のように、所定の有機材料が有機エレクトロルミネッセンス素子を形成するための有機化合物モノマーである場合には、高価な材料を無駄にすることがなくなる。

【0026】

【発明の実施の形態】以下、本発明に係る有機薄膜形成装置及び有機材料の再利用方法の好ましい実施の形態を図 1～4 を参照して詳細に説明する。

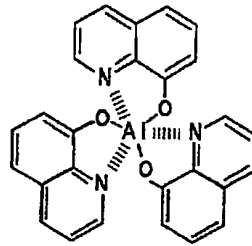
【0027】図 3 は、本実施の形態に係る有機薄膜形成装置の一例を示すものである。図 3 に示すように、この有機薄膜形成装置 1 は、例えばクライオポンプ等の真空排気系（図示せず）に連結される真空槽 2 を有し、この真空槽 2 の下部に設けられる複数の導入部 2A、2B に、有機材料用蒸発源 3（3A、3B）が仕切板 15 を挟んでそれぞれ配設される。

【0028】各有機材料用蒸発源 3A、3B の内部には、例えば、有機 EL 素子を作製するための有機化合物オリゴマーとして、Alq₃、[Tris(8-hydroxyquinolin

れる。

【0029】

【化1】



Alq₃

【0030】各有機材料用蒸発源3A、3Bの上側近傍には、有機材料の蒸気を遮断し封じこめておくためのシャッター4（4A、4B）がそれぞれ設けられ、これらのシャッター4A、4Bの上部には、後述する有機材料を加熱するためのヒーター5（5A、5B）がそれぞれ設けられている。なお、各シャッター4A、4Bの上方近傍には、成膜速度を測定するための膜厚モニター6（6A、6B）が設けられる。

【0031】また、各有機材料用蒸発源3A、3Bの周囲には、シュラウド7が設けられている。このシュラウド7は、後述するようにその内部に液体窒素等が循環されるもので、各有機材料用蒸発源3A、3B周辺の水分及びシャッター4A、4Bから再蒸発する有機材料14の蒸気を捕獲する機能を有するものである。

【0032】一方、真空槽2の上部には、蒸着膜を成膜すべき基板8が配置される。そして、基板8の上方に、加熱用の例えば温水パイプ9を有する加熱部10が、基板8に密着するように設けられる。さらに、基板8の下

方には、有機材料の蒸気を遮るためのメインシャッター11が設けられる。

【0033】また、真空槽2の側壁の近傍には、基板8及びメインシャッター11を取り囲むようにシュラウド12が設けられる。このシュラウド12は、その内部に液体窒素等が循環されるもので、基板8の周辺の水分及び真空槽2の内壁から再蒸発する有機材料14の蒸気を捕獲する機能を有するものである。

【0034】さらに、真空槽2には、窒素ガス等の不活性ガスを真空槽2内に導入するためのガス導入手段13

が連結されている。

【0035】図1は、本実施の形態の要部を示すもので、図1（a）は、一つのシャッター4近傍の構成を示す概略構成図、図1（b）は、シャッター4に付着した有機材料の再利用方法を示す説明図である。

【0036】図1（a）に示すように、有機材料用蒸発源3の上方に設けられるシャッター4は、アーム40によって支柱41に取り付けられ、水平方向に回転自在となっている。シャッター4の上面に設けられるヒーター5は、リード線50を介して真空槽2の外部に設けた電

源装置51に接続されている。

【0037】シャッター4は、例えば、チタン（Ti）、モリブデン（Mo）等の高融点金属製の円盤状の部材からなり、その下面には鏡面が形成されている。

【0038】一方、図1（b）に示すように、有機材料用蒸発源4の周囲に設けられるシュラウド7の内部には、例えば、液体窒素等の冷却媒体71が充填されている。また、シュラウド7の上面には、シャッター4の下面に付着した有機材料14を回収するための凹部からなる収容部70が形成されている。

【0039】そして、図2に示すように、シャッター4は、有機材料用蒸発源3の上方とシュラウド7の収容部70の上方との間を移動するように構成されている。この場合、シャッター4はシュラウド7の収容部70に近く近接するように配される。

【0040】また、図1及び図2に示すように、シュラウド7の収容部70はシャッター4の直径より大きい直径を有する円形状を有し、かつ、有機材料用蒸発源3の口径より大きい直径を有するように構成される。

【0041】図4は、有機材料用蒸発源3、シャッター4及びシュラウド7の収容部70の位置関係を示すものである。図4に示すように、真空槽2内において、複数（図4に示す例では3つ）の同じ構成の有機材料用蒸発源3（3A、3B、3C）、シャッター4（4A、4B、4C）、シュラウド7（7A、7B、7C）が設けられる場合には、各有機材料用蒸発源3A、3B、3C、シャッター4A、4B、4C、シュラウド7A、7B、7Cの収容部70A、70B、70Cが同芯円上に配置される。そして、各シャッター4A、4B、4Cは、支柱41の回転により有機材料用蒸発源3A、3B、3Cの上方と上記収容部70A、70B、70Cの上方との間を移動するように構成される。

【0042】このような構成を有する本実施の形態において、基板8上に有機薄膜を形成する場合には、真空槽2内の真空排気を行って真空槽2内を所定の圧力にした後、シャッター3及びメインシャッター11を閉じた状態で各有機材料用蒸発源3内の有機材料を所定の温度に加熱する。

【0043】そして、各有機材料用蒸発源3内の有機材料が所定の温度に達して所要の蒸発量が得られた後に、シャッター4を開くとともにメインシャッター11を開き、所定の析出速度で基板8上に有機材料を蒸着して堆積させる。そして、所定の厚みの有機薄膜を形成した後シャッター4及びメインシャッター11を閉じる。

【0044】このような真空蒸着を繰り返すと、図1に示すように、シャッター4の下面に有機材料14が付着して堆積する。このシャッター4に付着した有機材料は、次のような方法によって回収し、再利用することができる。

【0045】まず、真空槽2の内部の圧力を大気圧に戻

し、図2に示すように、シャッター4を有機材料用蒸発源3の上方から移動してシュラウド7の収容部70の上方に配置させる。

【0046】そして、シャッター4の上面に設けたヒーター5に通電してシャッター4を加熱し、その下面に付着した有機材料14を加熱する。この場合、有機材料14が蒸発する温度（例えば、Alq₃の場合は350℃程度）で有機材料14を加熱する。

【0047】この蒸発した有機材料14の蒸気は、シュラウド7の表面によって冷却され、固体状態となってシュラウド7の収容部70内に捕獲される。そして、この有機材料14を回収すれば、再度蒸着用の有機材料として用いることができる。

【0048】このような構成を有する本実施の形態によれば、容易にシャッター4の下面を有機材料14の付着しない状態とすることができ、その結果、成膜時におけるシャッター4の開閉の際の振動によって有機材料14が粉体として舞い上がることはない。このため、常に均一な厚みの蒸着膜を得ることができる。また、シャッター4の清掃を行う頻度を少なくすることができる。

【0049】また、シャッター4の下面に付着した有機材料14は、真空中で蒸発されたものであるため精製されている場合が多く、純度の高い有機蒸発材料を得ることができる。したがって、これを再利用することにより、より高品質の有機薄膜を形成することができる。

【0050】一方、有機EL薄膜を形成するための有機材料は高価なものもあるが、本実施の形態によれば、蒸発材料を無駄にすることがなく、ひいてはコストダウンを図ることができる。

【0051】なお、本発明は上述の実施の形態に限られることなく、種々の変更を行うことができる。例えば、シャッター4上に設けられるヒーター5のパターンは種々の形状とすることができる。また、ヒーター5として、赤外線ランプヒーターを始め種々のものを用いることができる。

【0052】また、有機材料14を収容するための容器をシュラウド7と別に設けることもできるが、上述した実施の形態のように、シュラウド7の上面に収容部70を設けるようにすれば、よりコンパクトな構成とすることができる。

【0053】さらに、上述の実施の形態においては、シュラウド7の内部に冷却媒体71として液体窒素を循環させるようにしたが、例えば、冷却水を循環させるように構成してもよい。

【0054】さらにまた、シャッター4を加熱して有機材料14を回収する時期は、任意のものとすることができる。ただし、真空中では有機材料14の捕獲が困難であるため、例えば、メンテナンス時など大気中でシャッター4を加熱することが好ましい。

【0055】さらにまた、本発明は有機EL素子を作製するための装置のみならず、例えば、有機センサーを作製する装置や蒸着重合により高分子薄膜を形成する装置にも適用することができる。もっとも、本発明は高価な有機材料を用いる有機EL素子作製装置において特に効果が大きいものである。

【0056】

【発明の効果】以上述べたように本発明によれば、シャッターの有機材料用蒸発源に対向する面を容易に有機材料の付着しない状態とすることができ、成膜時におけるシャッターの開閉の際の振動による有機材料の舞い上がりを防止することができる。したがって、本発明によれば、常に均一な厚みの蒸着膜を得ることができ、また、シャッターの清掃を行う頻度を少なくすることができる。

【0057】さらに、シャッターに付着した有機材料は、真空中で蒸発されたものであるため精製されている場合が多く、純度の高い有機蒸発材料を得ることができる。したがって、これを再利用することにより、より高品質の有機薄膜を形成することができる。

【0058】一方、有機EL薄膜を形成するための有機材料は高価なものもあるが、本発明を用いれば、蒸発材料を無駄にすることがなく、ひいてはコストダウンを図ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明に係る有機薄膜形成装置の実施の形態の要部を示すもので、図1(a)はシャッター近傍の構成を示す概略構成図、図1(b)はシャッターに付着した有機材料の再利用方法を示す説明図である。

【図2】同実施の形態におけるシャッターの移動を示す説明図である。

【図3】同実施の形態の全体構成を示す概略構成図である。

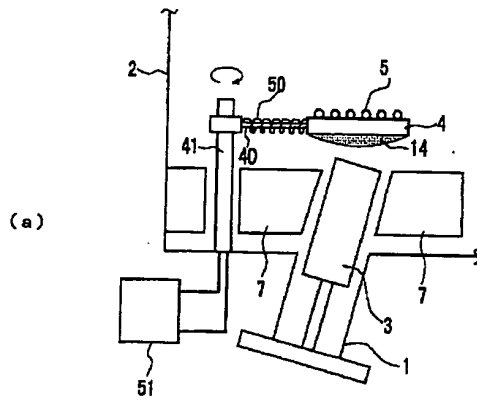
【図4】同実施の形態における有機材料用蒸発源、シャッター及びシュラウドの収容部の位置関係を示す説明図である。

【図5】従来の有機薄膜形成装置の概略構成図である。

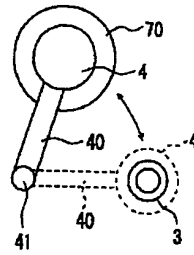
【符号の説明】

1……有機薄膜形成装置 2……真空槽 3(3A、3B、3C)……有機材料用蒸発源 4(4A、4B、4C)……シャッター 5(5A、5B、5C)……ヒーター 6A、6B……膜厚モニター
7(7A、7B、7C)……シュラウド 8……基板
9……温水パイプ 10……加熱部
11……メインシャッター 12……シュラウド
14……有機材料 50……リード線 51……電源装置
70(70A、70B、70C)……収容部
71……冷却媒体

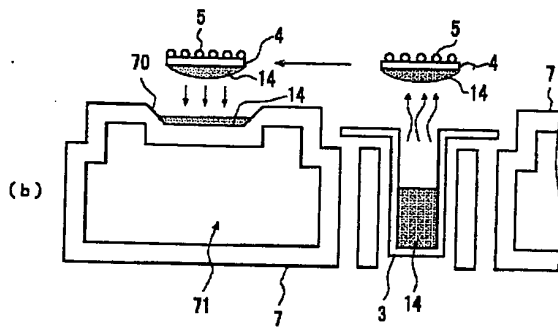
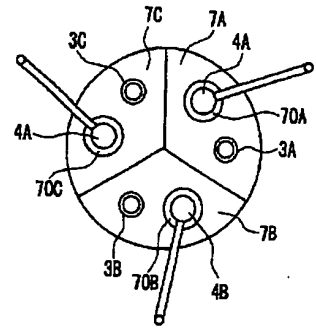
【図 1】



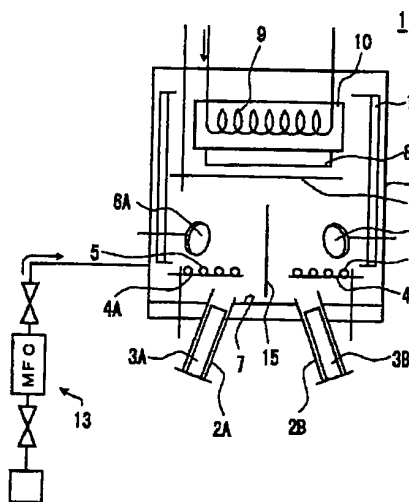
【図 2】



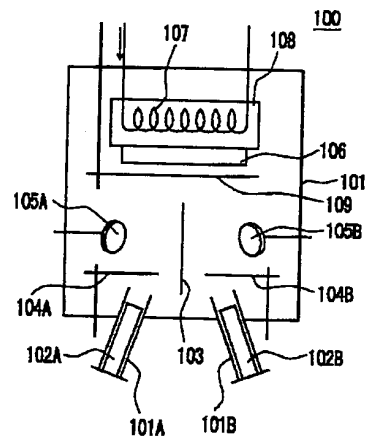
【図 4】



【図 3】



【図 5】



BEST AVAILABLE COPY